ChinaXiv合作期刊

chinaXiv:201711.01394v1

四川省常用能量饲料和蛋白质饲料中重金属分布研究[1]

柏　雪[1,2,3] 原泽鸿[1,2] 王建萍[1,2] 丁雪梅[1,2] 白世平[1,2] 曾秋凤[1,2] 张克英[1,2*]

（1.教育部动物抗病营养研究重点实验室 成都 611130；2.四川农业大学动物营养研究所，成都 611130；3.西南民族大学生命科学与技术学院，成都 610000）

摘　要：本试验旨在了解四川省常用能量饲料和蛋白质饲料中重金属的分布，为饲料和畜产品安全生产提供科学依据。采集四川省内常用的 68 份能量饲料[包括玉米、小麦、干酒糟及其可溶物（DDGS）、喷浆玉米皮、麦麸、米糠]和 61 份蛋白质饲料（包括玉米蛋白粉、玉米胚芽粕、豆粕、菜籽粕和棉籽粕），利用电感耦合等离子体质谱（ICP-MS）法对锰（Mn）、铜（Cu）、锌（Zn）、钒（V）、铬（Cr）、钴（Co）、镍（Ni）、硒（Se）、钼（Mo）、镉（Cd）、砷(As)、汞（Hg）和铅（Pb）含量进行了测定。结果表明：1）玉米中的 Cu、Cr 和 Pb 超标率分别为 5.00%、20.00%和 5.00%，超标样品平均值分别为 11.00、1.41 和 1.06 mg/kg；小麦中的 Cu、Zn、Cr、Se 和 Pb 超标率分别为 50.00%、30.00%、50.00%、20.00%和 30.00%，超标样品平均值分别为 12.96、54.67、4.92、0.53 和 0.72 mg/kg。2）麦麸中的 Cu、Zn、Cr、Se、Cd 和 Pb 超标率分别为 100.00%、54.55%、81.82%、9.09%、45.45%和 72.73%，超标样品平均值分别为 16.01、62.00、13.96、0.82、0.42 和 1.99 mg/kg；米糠中的 Cu、Zn、Cr、As、Se、Cd 和 Pb 超标率分别为 83.33%、16.67%、83.33%、83.33%、16.67%、66.67%和 100.00%，超标样品平均值分别为 11.48、64.00、5.37、1.05、0.32、0.23 和 19.57 mg/kg。3）玉米胚芽粕中的 Cu、Zn、Cr、As、Se 和 Pb 超标率分别为 25.00%、37.50%、75.00%、12.50%、25.00%和 50.00%，超标样品平均值分别为 13.50、64.00、6.10、1.82、0.46 和 1.66 mg/kg；玉米蛋白粉中的 Cu、Cr 和 Se 超标率分别为 11.11%、55.56%和 55.56%，超标样品平均值分别为 11.40、1.56 和 0.94 mg/kg；喷浆玉米皮中的 Zn、Cr 和 Pb 超标率分别为 44.44%、77.78%和 55.56%，超标样品平均值分别为 57.50、11.75、6.13、5.57 和 1.65 mg/kg；DDGS 中的 Cu、Zn、Cr、Se、Cd 和 Pb 超标率分别为 33.33%、58.33%、66.67%、8.33%、8.33%和 66.67%，超标样品平均值分别为 11.75、62.57、5.57、0.30、0.62 和 4.47 mg/kg。4）豆粕

收稿日期：2016-01-18

基金项目：国家自然科学基金（青年项目 31402031）；四川省教育厅青年基金（13ZB0290）；科技部支撑计划(2014BAD13B04);四川省科技厅项目(2014NZ0043,2014NZ0002,2013NZ0054)

作者简介：柏　雪（1985—），女，四川广安人，博士研究生，从事饲料及畜产品安全研究。E-mail: 287190724@qq.com

*通信作者：张克英，教授，博士生导师，E-mail: zkeying@sicau.edu.cn

中的 Cr 和 Se 超标率分别为 15.00%和 25.00%，超标样品平均值分别为 3.90 和 1.63 mg/kg；棉籽粕中的 Cr、Se 和 Pb 超标率分别为 40.00%、30.00%和 15.00%，超标样品平均值分别为 3.43、1.18 和 3.14 mg/kg；菜籽粕中的 Cr、As、Se、Cd 和 Pb 超标率分别为 81.82%、18.18%、45.45%、9.09%、45.45%和 72.73%，超标样品平均值分别为 7.48、2.22、0.36、0.24 和 4.91 mg/kg。综合考虑，粮食加工副产物和菜籽粕中的重金属污染较严重，其中 Cr 和 Pb 的含量在部分饲料原料中严重超标，具有潜在的危险，应引起重视。

关键词：电感耦合等离子体质谱；饲料原料；重金属；污染

中图分类号：S816

重金属一般指密度大于4.5 g/cm^{3}的金属元素，目前已知的重金属元素有45种。环境中重金属污染种类主要有铜（Cu）、锌（Zn）、铬（Cr）、钴（Co）、砷(As)、镉（Cd）、汞（Hg）和铅（Pb）等，而饲料重金属污染主要指Cd、Pb、As、Hg等生物毒性显著的元素。随着一些动物必需的重金属元素（Cu、Zn等）在饲料中的超量添加，使得这些元素也成为饲料中潜在的重金属污染元素。饲料中的重金属除了人为的超量添加（Cu、Zn等）外，主要是来自于饲料原料的污染和饲料加工过程中机械、器皿的使用不当[1-2]。由于重金属对动物和人类的很多毒害作用，饲料及饲料原料一旦受到重金属污染将很难消除，因此，重金属在饲料原料、饲料以及畜产品中的污染问题应引起足够重视。我国针对配合饲料中Cr、Cd、Pb、Hg以及As含量进行了限量规定[5]。涂杰峰等[3]调查发现，水产饲料原料样品中的Pb含量≤7.51 mg/kg，Hg含量≤0.476 mg/kg，As含量≤1.43 mg/kg，Cd含量≤1.39 mg/kg。谢云发等[4]研究发现，猪配合饲料中的Cu、Zn超标率均达100%。然而饲料原料中除米糠、鱼粉、磷酸盐、石粉外皆无相关标准。行业标准NY 861—2004[6]规定了粮食及制品中重金属的限量，包括Cu、Zn、Pb、Cd、As、Cr、硒（Se）和Hg，涉及大米、面粉和玉米等多种粮食。但近年来随着多形式的粮食加工副产物如干酒糟及其可溶物（DDGS）、玉米胚芽粕和玉米皮的广泛应用，重金属污染面临新的风险。减少重金属对动物的危害主要是以预防为主，即减少饲料及饲料原料中重金属的含量。因此，本试验采集四川省内各大饲料销售企业和养殖场应用的主要饲料原料，分析其重金属含量，以进一步摸清重金属在四川省内应用的饲料原料中的污染状况和污染规律，为加强饲料原料的监管，指导企业合理使用原料，确保饲料与畜产品安全提供科学依据。

1 材料与方法

1.1 样品采集

1.1.1 采样时间与地点

chinaXiv:201711.01394v1

chinaXiv:201711.01394v1

2014 年 7—9 月于四川省不同规模的饲料厂、养殖场（户）、粮食集散地采集样品，记录饲料产地。

1.1.2 采样要求

严格按照 GB/T 14699.1—2005《饲料采样》[7]标准进行采样。

1.1.3 样品种类与数量

样品包括能量饲料：玉米（20 份）、DDGS（12 份）、喷浆玉米皮（9 份）、小麦（10 份）、麦麸（11 份）、米糠（6 份）；蛋白质饲料：豆粕（20 份）、玉米胚芽粕（8 份）、菜籽粕（11 份）、玉米蛋白粉（9 份）和棉籽粕（13 份）。共计 129 份。

1.2 仪器与试剂

超纯水制备仪（Millipore，美国）、电感耦合等离子体质谱（ICP-MS）（Agilent 7500a，美国）、微波消解炉（Milestone ethos t 型，意大利）、重金属标准品（Sigma，美国）、硝酸（merck，优级纯，德国）、超纯水。

1.3 检测指标

重金属：锰（Mn）、Cu、Zn、钒（V）、Cr、Co、镍（Ni）、Se、钼（Mo）、Cd、Hg 和 Pb 及类金属 As，共 13 种。

1.4 测定方法

利用微波消解炉进行消解，参考王小平等[8]和黄李蓉等[9]的方法采用 ICP-MS 对样品中重金属含量进行定量检测。

1.5 限量标准

本研究参照的重金属限量标准见表 1[3]，计算样品的总样品平均值、超标率、超标样品平均值和最大值。

表 1　粮食及其制品中重金属限量标准(NY861—2004)

Table 1　Limited standard of heavy metal in foodstuffs and its products (NY861—2004)　　mg/kg

项目 Items	铜 Cu	锌 Zn	铅 Pb	镉 Cd	砷 As	铬 Cr	硒 Se	汞 Hg
谷物及其制品 Grains and its products	10	50	0.4	0.20(大米) 0.10(面粉) 0.05(玉米)	0.7	1	0.3	0.02
豆类及其制品 Beans and its products	20	100	0.8	0.20	0.5	1	0.3	0.02

1.6 数据分析

采用 Excel 2007 对数据进行统计分析，结果以平均值方式表示，误差以 SEM 表示，同时计算变异系数（CV，%）。采用 SPSS 19.0 对不同产地的饲料原料重金属含量进行方差分析（ANOVA），$P<0.05$ 为差异显著。

2 结果与分析

2.1 饲料原料中重金属整体分布情况

从表 2 中可以看到，这些常用的大宗饲料原料（包括玉米、DDGS、喷浆玉米皮、小麦、麦麸、米糠、玉米蛋白粉、玉米胚芽粕、豆粕、菜籽粕和棉籽粕）中 Mn、Cu、Zn、V、Cr、Co、Ni、As、Se、Mo、Cd、Hg 和 Pb 这 13 种元素的平均含量分别为 41.79、8.68、40.28、0.60、3.36、0.29、1.29、0.20、0.45、1.23、0.06、0.004 9 和 1.87 mg/kg。其中 Mn 和 Pb 检出的最高值样品皆为西南地区的米糠，分别为 200.00 和 80.00 mg/kg；Cu、Ni 和 Mo 检出的最高值样品为棉籽粕，来自于西北地区，分别为 19.60、5.20 和 8.00 mg/kg；Zn 和 As 检出的最高值样品为来自于西南地区的菜籽粕，分别为 86.00 和 3.80 mg/kg；V 检出的最高值样品为玉米胚芽粕（5.80 mg/kg），来自于东北地区；Cr 和 Cd 检出的最高值样品皆为麦麸，分别来自于华北地区（56 mg/kg）和西南地区（1.12 mg/kg）；Co 检出的最高值样品为 DDGS（8.60 mg/kg），来自于西南地区；Se 检出的最高值样品为豆粕（14.80 mg/kg），来自于华北地区。

表 2　饲料原料中重金属整体分布

Table 2　Heavy metal global distribution in feed ingredients

项目 Items	锰 Mn	铜 Cu	锌 Zn	钒 V	铬 Cr	钴 Co	镍 Ni	砷 As	硒 Se	钼 Mo	镉 Cd	汞 Hg	铅 Pb
样品数 Number of tested samples	129	129	129	129	129	129	129	129	129	129	129	129	129
平均值 Mean/(mg/kg)	41.79	8.68	40.28	0.60	3.36	0.29	1.29	0.20	0.45	1.23	0.06	0.004 9	1.87
中位值 Median/(mg/kg)	20.00	8.80	38.00	0.24	1.06	0.13	0.90	0.07	0.22	0.84	0.02	0.004 4	0.03
最高值 Maximum/(mg/kg)	200.00	19.60	86.00	5.80	56.00	8.60	5.20	3.80	14.80	8.00	1.12	0.020 0	80.00
最高值样品 Sample found	米糠 Rice bran	棉籽粕 Cottonseed meal	菜籽粕 Rapeseed meal	玉米胚芽粕 Corn germ meal	麦麸 Wheat bran	干酒糟及其可溶物 DDGS	棉籽粕 Cottonseed meal	菜籽粕 Rapeseed meal	豆粕 Soybean meal	棉籽粕 Cottonseed meal	麦麸 Wheat bran	玉米胚芽粕 Corn germ meal	米糠 Rice bran
最高值样品产地 Area of origin	西南 Southwest	西北 Northwest	西南 Southwest	东北 Northeast	华北 Northern	西南 Southwest	西北 Northwest	西南 Southwest	华北 Northern	西北 Northwest	西南 Southwest	西南 Southwest	西南 Southwest

2.2 不同地区来源的饲料原料中重金属分布

本次原料样品来自中国 6 大地区，分别为西南、西北、华北、华中、华东、东北。从表 3 中可以看到，各地区间饲料原料中重金属的含量呈现不同程度的差异，Cu、Zn、Co、Mo、Cr、Cd 的含量在各区域间差异并不显著（P>0.05）；西南地区、华北地区和华中地区饲料原料中 Mn 含量显著高于西北地区和华东地区（P<0.05）；西南地区饲料原料中 Se 含量显

chinaXiv:201711.01394v1

著高于西北地区、华中地区、华东地区和东北地区（*P*<0.05）；华北地区饲料原料中 Ni 含量显著高于其他所有地区（*P*<0.05）；西南地区、西北地区和华中地区饲料原料中 As 含量显著高于华北地区（*P*<0.05）；西南地区饲料原料中 Pb 和 Hg 含量都显著高于其他所有地区（*P*<0.05）。从数据中可以发现，西南地区饲料原料中的重金属污染较为严重。

表 3　各地区饲料原料中重金属分布

Table 3　Heavy metal distribution in feed ingredients from different region　　mg/kg

项目 Items	西南 Southwest	西北 Northwest	华北 Northern	华中 Central	华东 Eastern	东北 Northeast	*P* 值 *P*-value
锰 Mn	54.56[a]	23.94[b]	51.84[a]	82.77[a]	28.72[b]	43.26[ab]	0.041
铜 Cu	8.49	7.34	11.47	9.80	7.78	9.15	0.122
锌 Zn	44.12	36.99	45.87	37.77	39.28	39.08	0.627
硒 Se	1.16[a]	0.28[b]	0.80[ab]	0.09[b]	0.40[b]	0.55[b]	0.015
钒 V	4.19	1.78	5.52	1.38	6.06	3.04	0.098
钴 Co	0.60	0.17	0.35	0.06	0.14	0.22	0.305
镍 Ni	1.42[a]	1.04[a]	2.56[b]	0.40[a]	1.01[a]	1.15[a]	0.001
钼 Mo	0.39	0.16	0.14	0.04	0.08	0.21	0.177
铬 Cr	0.27	0.46	1.24	0.32	0.55	0.24	0.237
砷 As	0.93[a]	1.04[a]	1.96[b]	0.57[a]	1.60[ab]	1.36[ab]	0.035
镉 Cd	0.10	0.03	0.05	0.15	0.02	0.08	0.103
汞 Hg	0.01[a]	0.00[b]	0.00[b]	0.00[b]	0.00[b]	0.01[b]	0.010
铅 Pb	3.68[a]	0.44[b]	0.51[b]	0.30[b]	0.16[b]	1.06[b]	0.001

同行数据肩标不同小写字母表示差异显著（*P*<0.05），相同或无字母表示差异不显著（*P*>0.05）。

In the same row, values with different small letter superscripts mean significant difference (*P*<0.05), while with the same or no letter superscripts mean no significant difference (*P*>0.05).

2.3 谷物类饲料及其副产物中重金属分布

谷物类饲料及副产物饲料中各种重金属分布分别见表 4、5、6。

参照表 1 标准中谷物及其制品相关规定，玉米中的 Cu、Cr 和 Pb 超标率分别为 5.00%、20.00%和 5.00%，超标样品平均值分别为 11.00、1.41 和 1.06 mg/kg，略高于标准；铅的变异系数（2 101.16%）极大，其中 1 个样品的铅含量高达 1.06 mg/kg。小麦中的 Cu、Zn、Cr、Se 和 Pb 超标率分别为 50.00%、30.00%、50.00%、20.00%和 30.00%；其中 Cr 的超标样品平均值为 4.92 mg/kg，超过标准 3.92 倍，总样品平均值为 2.77 mg/kg，超过标准 1.77 倍，情况较为严重，小麦其他超标指标的平均值略高于标准，总样品平均值未超标。

chinaXiv:201711.01394v1

麦麸中的 Cu、Zn、Cr、Se、Cd 和 Pb 超标率分别为 100.00%、54.55%、81.82%、9.09%、45.45%和 72.73%；其中 Cr 的超标样品平均值为 13.96 mg/kg，是标准的 13.96 倍（其中 2 个样品分别高达 56.00 和 52.00 mg/kg，均产自河南省），Pb 的超标样品平均值为 1.99 mg/kg，接近标准的 4 倍，Cr 和 Pb 这 2 种元素含量的总样品平均值（11.45 和 1.60 mg/kg）也超标；Cu、Zn、Cd 和 Se 的超标样品平均值略高于标准，总样品平均值未超标。米糠中的重金属元素污染情况和麦麸类似，Cu、Zn、Cr、As、Se、Cd 和 Pb 均有不同程度的超标，超标率分别为 83.33%、16.67%、83.33%、83.33%、16.67%、66.67%和 100.00%；其中 Pb 的超标样品平均值高达 19.57 mg/kg，是标准的近 50 倍，其中一个样品（产自河北省）含量甚至达到 80.00 mg/kg，是标准的 200 倍，Cr 的超标样品平均值为 5.37 mg/kg，是标准的 5.37 倍，这 2 种元素含量的总样品平均值（4.55 和 19.57 mg/kg）也远远超出标准；其他元素的超标样品平均值略高于标准，总样品平均值未超标；除 Se、Mn 和 Co 的分布较平均外，其他样品的变异系数均较高。

玉米加工副产物中的玉米胚芽粕的 Cu、Zn、Cr、As、Se 和 Pb 均有不同程度的超标，超标率分别为 25.00%、37.50%、75.00%、12.50%、25.00%和 50.00%，除 Cr 和 Pb 的超标样品平均值（6.10 和 1.66 mg/kg）远高于标准，其他超标元素的超标样品平均值均略高于标准；同时 Cr 和 Pb 的总样品平均值（4.61 和 0.87 mg/kg）也高于标准；所有重金属在玉米胚芽粕中的分布皆不均衡，变异系数较大。

玉米蛋白粉中的 Cu、Cr 和 Se 超标率分别为 11.11%、55.56%和 55.56%，其中 Se 超标样品平均值为 0.94 mg/kg，为标准的 3.13 倍；Cr 和 Se 的总样品平均值为 1.03 和 0.62 mg/kg，也超出标准。Cd 和 Hg 变异系数较小，分别为 9.37%和 14.57%，其他指标分布均不均衡，变异系数均较大。

喷浆玉米皮中的 Zn、Cr 和 Pb 超标率分别为 44.44%、77.78%和 55.56%；其中 Zn 超标样品平均值为 57.50 mg/kg，仅为标准的 1.15 倍，但 Cr 和 Pb 的超标样品平均值为 6.13 和 1.65 mg/kg，远高于标准，同时 Cr 和 Pb 的总样品平均值（4.86 和 0.94 mg/kg）也超标。DDGS 中的 Cu、Zn、Cr、Se、Cd 和 Pb 均有不同程度的超标，超标率分别为 33.33%、58.33%、66.67%、8.33%、8.33%和 66.67%；除 Cr、Cd 和 Pb 的超标样品平均值（5.57、0.62 和 4.47 mg/kg）较高之外，其他指标超标样品平均值均略高于标准，同时这 3 种元素的总样品平均值（3.84、0.07 和 3.01 mg/kg）也高于标准。

由此可以看出，加工副产物如玉米胚芽粕、DDGS、麦麸、米糠等的污染情况较其本体（玉米、小麦）更为严重，无论是是超标的元素数量、超标程度和平均含量都较高，特别是米糠。

chinaXiv:201711.01394v1

ChinaXiv合作期刊

表 4　谷物类饲料中重金属分布

Table 4　Heavy metal distribution in grains feed

原料 Ingredients	样品数 Sample number	项目 Items	锰 Mn	铜 Cu	锌 Zn	钒 V	铬 Cr	钴 Co	镍 Ni	砷 As	硒 Se	钼 Mo	镉 Cd	汞 Hg	铅 Pb
玉米 Corn	20	超标率 Over standard rate/%	—	5.00	0.00	—	20.00	—	—	0.00	0.00	—	0.00	0.00	5.00
		超标样品平均值/(mg/kg) Mean of over standard sample	—	11.00	—	—	1.41	—	—	—	—	—	—	—	1.06
		总样品平均值 Mean of total sample/(mg/kg)	11.37	2.57	25.22	0.12	0.51	0.05	0.51	0.04	0.21	0.53	0.01	0.00	0.07
		最高值 Maximum/(mg/kg)	28.00	11.00	40.00	0.68	2.00	0.48	2.40	0.44	0.24	2.60	0.02	0.01	1.06
		SEM	1.06	0.52	2.48	0.04	0.13	0.03	0.13	0.02	0.00	0.11	0.00	0.00	0.05
		变异系数 CV/%	39.30	82.52	51.76	79.38	66.90	143.86	141.48	148.49	6.60	80.84	15.07	11.86	2 101.16
小麦 Wheat	10	超标率 Over standard rate/%	—	50.00	30.00	—	50.00	—	—	0.00	20.00	—	0.00	0.00	30.00
		超标样品平均值 Mean of over/(mg/kg) standard sample	—	12.96	54.67	—	4.92	—	—	0.00	0.53	—	0.00	0.00	0.72
		总样品平均值 Mean of total sample/(mg/kg)	55.20	9.48	33.02	0.88	2.77	0.34	1.15	0.11	0.27	0.78	0.04	0.00	0.22
		最高值 Maximum/(mg/kg)	182.00	14.40	58.00	5.40	14.2	1.48	3.00	0.64	0.70	2.40	0.07	0.01	0.94
		SEM	15.40	1.25	5.44	0.54	1.43	0.16	0.39	0.06	0.05	0.35	0.01	0.00	0.12

chinaXiv:201711.01394v1

变异系数 CV/%	83.69	39.55	49.38	185.00	154.44	141.56	101.04	179.58	57.46	132.77	52.12	22.51	172.50

“—”为无相关标准。下表同。

“—” means no relevant standards. The same as below.

表 5 麦麸和米糠中重金属分布

Table 5 Heavy metal distribution in wheat bran and rice bran

原料 Ingredients	样品数 Sample number	项目 Items	锰 Mn	铜 Cu	锌 Zn	钒 V	铬 Cr	钴 Co	镍 Ni	砷 As	硒 Se	钼 Mo	镉 Cd	汞 Hg	铅 Pb
麦麸 Wheat bran	11	超标率 Over standard rate/%	—	100.00	54.55	—	81.82	—	—	0.00	9.09	—	45.45	0.00	72.73
		超标样品平均值 Mean of over standard sample/(mg/kg)	—	16.01	62.00	—	13.96	—	—	0.00	0.82	—	0.42	0.00	1.99
		总样品平均值 Mean of total sample/(mg/kg)	137.45	16.07	54.36	0.43	11.45	0.17	0.80	0.20	0.29	1.03	0.23	0.00	1.60
		最高值 Maximum/(mg/kg)	178.00	19.60	84.00	1.10	5.00	0.40	2.80	0.38	0.82	1.58	1.12	0.01	7.00
		SEM	12.66	0.90	3.89	0.13	0.58	0.04	0.30	0.04	0.06	0.12	0.10	0.00	0.64
		变异系数 CV/%	29.12	17.68	22.61	94.19	184.56	81.27	119.88	60.76	62.44	36.59	141.37	10.61	127.58

chinaXiv:201711.01394v1

米糠 Rice bran	6	超标率 Over standard rate/%	—	83.33	16.67	—	83.33	—	—	83.33	16.67	—	66.67	0.00	100.00
		超标样品平均值 Mean of over standard sample/(mg/kg)	—	11.48	64.00	—	5.37	—	—	1.05	0.32	—	0.23	0.00	19.57
		总样品平均值 Mean of total sample/(mg/kg)	171.67	10.20	43.03	0.25	4.55	0.11	1.18	0.93	0.25	0.89	0.17	0.01	19.57
		最高值 Maximum/(mg/kg)	200.00	15.40	64.00	0.52	16.20	0.15	3.60	1.90	0.32	1.52	0.30	0.01	80.00
		SEM	9.77	1.66	7.55	0.08	2.67	0.01	0.59	0.23	0.02	0.22	0.05	0.00	13.60
		变异系数 CV/%	12.73	36.47	39.24	69.90	131.15	24.27	111.37	55.38	15.10	54.59	62.18	46.00	155.41

表 6 玉米加工副产物中重金属分布

Table 6 Heavy metal distribution in by-products of corn

原料 Ingredients	样品数 Sample number	项目 Items	锰 Mn	铜 Cu	锌 Zn	钒 V	铬 Cr	钴 Co	镍 Ni	砷 As	硒 Se	钼 Mo	镉 Cd	汞 Hg	铅 Pb
干酒糟及其可溶物 DDGS	12	超标率 Over standard rate/%	—	33.33	58.33	—	66.67	—	—	0.00	8.33	—	8.33	0.00	66.67
		超标样品平均值 Mean of over standard sample/(mg/kg)	—	11.75	62.57	—	5.57	—	—		0.30	—	0.62		4.47
		总样品平均值 Mean of total	22.17	7.78	48.70	1.35	3.84	1.05	1.87	0.24	0.22	1.14	0.07	0.01	3.01

chinaXiv:201711.01394v1

		sample/(mg/kg)													
		最高值 Maximum/(mg/kg)	42.00	12.60	86.00	5.00	15.20	8.60	5.20	0.66	0.30	3.00	0.62	0.01	14.60
		SEM	3.56	1.09	6.33	0.48	1.33	0.76	0.47	0.07	0.01	0.24	0.05	0.01	1.31
		变异系数 CV/%	53.22	46.52	43.09	117.17	114.69	240.11	84.19	92.69	16.96	68.46	236.36	40.55	144.40
喷浆玉米皮 Corn bran with syrup	9	超标率 Over standard rate/%	—	0.00	44.44	0.00	77.78	—	0.00	0.00	0.00	—	0.00	0.00	55.56
		超标样品平均值 Mean of over standard sample/(mg/kg)	—	0.00	57.50		6.13	—				—			1.65
		总样品平均值 Mean of total sample/(mg/kg)	18.22	5.60	36.49	0.65	4.86	0.18	1.49	0.14	0.23	0.97	0.02	0.00	0.94
		最高值 Maximum/(mg/kg)	48.00	9.60	62.00	3.60	12.00	0.82	3.60	0.36	0.46	1.54	0.02	0.01	2.80
		SEM	5.75	0.96	8.56	0.40	1.56	0.09	0.49	0.04	0.03	0.19	0.00	0.00	0.39
		变异系数 CV/%	89.18	48.58	66.33	172.86	90.87	139.68	93.54	77.41	38.50	54.54	19.07	7.77	116.58
玉米胚芽粕 Corn germ meal	8	超标率 Over standard rate/%	—	25.00	37.50	—	75.00	—	—	12.50	25.00	0.00	0.00	0.00	50.00
		超标样品平均值 Mean of over standard sample/(mg/kg)	—	13.50	64.00	—	6.10	—	—	1.82	0.46		0.00	0.00	1.66
		总样品平均值 Mean of total sample/(mg/kg)	33.70	8.83	44.25	1.29	4.65	0.37	1.24	0.47	0.28	1.10	0.03	0.01	0.87
		最高值 Maximum/(mg/kg)	166.00	14.20	78.00	5.80	9.80	1.62	2.20	1.82	0.62	2.80	0.16	0.02	3.40

chinaXiv:201711.01394v1

		SEM	20.23	1.14	7.14	0.70	1.39	0.20	0.32	0.22	0.05	0.29	0.02	0.01	0.44
		变异系数 CV/%	158.82	34.21	42.70	142.82	79.26	146.00	68.65	127.28	52.30	69.12	148.12	63.04	133.93
玉米蛋白粉 Corn gluten meal	9	超标率 Over standard rate/%	—	11.11	0.00	—	55.56	—	—	0.00	55.56	—	0	0	0
		超标样品平均值 Mean of over standard sample/(mg/kg)	—	11.40	0	—	1.56	—	—	0	0.94	—	0	0	0
		总样品平均值 Mean of total sample/(mg/kg)	6.44	6.87	16.53	0.18	1.03	0.02	0.43	0.15	0.62	0.50	0.02	0.01	0.03
		最高值 Maximum/(mg/kg)	9.20	11.40	64.00	0.48	2.00	0.22	1.38	0.52	1.80	1.02	0.02	0.01	0.12
		SEM	1.14	1.08	6.48	0.06	0.27	0.03	0.19	0.07	0.23	0.13	0.00	0.00	0.02
		变异系数 CV/%	49.96	44.46	110.80	97.75	73.52	297.66	125.04	120.02	107.48	73.46	9.37	14.57	198.59

2.4 油料饼粕类饲料中重金属分布

油料饼粕饲料中重金属分布见表 7。参照表 1 标准中豆类及其制品相关规定，豆粕中仅 Cr 和 Se 超标，超标率分别为 15.00%和 25.00%；其中 Se 的超标样品平均值为 3.90 mg/kg，超出限量标准 12 倍，总样品平均值为 1.14 mg/kg，仍然高出标准近 3 倍（其中一个样品 Se 含量高达 14.80 mg/kg，产自重庆）；除 Zn、Cr 和 Hg 含量的变异系数较小分布较平均外，其他元素分布均不均衡，变异系数均较大。棉籽粕中的 Cr、Se 和 Pb 超标率分别为 40.00%、30.00%和 15.00%，超标样品平均值分别为 3.43、1.18 和 3.14 mg/kg，都接近高于标准 3 倍，总样本平均值也超标；所有元素含量的变异系数都较大，特别是铅（286.19%），其中 1 个样品含量高达 7.44 mg/kg，产自新疆。菜籽粕中的 Cr、As、Se、Cd 和 Pb 超标率分别为 81.82%、18.18%、45.45%、9.09%和 72.73%，除 Se 和 Cd 的超标率较低，超标样品平均值仅为标准的 1.2 倍以外，其他指标超标率均较高，标样品平均值也介于标准的 4.44~7.48 倍；其中 Cr 的超标样品平均值为 7.48 mg/kg，是标准的 7.48 倍（其中 2 个样品高达 15.40 和 10.40 mg/kg，均产自四川）；Pb 的最大值为 22.00 mg/kg，是标准的 27.50 倍，该

chinaXiv:201711.01394v1

ChinaXiv合作期刊

样品同样产自四川省；Cr 和 Pb 这 2 个元素含量的总样品平均值（6.25 和 3.58 mg/kg）也超标，变异系数为 111.32%和 179.52%。

表 7 油料饼粕类饲料中重金属分布
Table 7 Heavy metal distribution in oil meal

原料 Ingredients	样品数 Sample number	项目 Items	锰 Mn	铜 Cu	锌 Zn	钒 V	铬 Cr	钴 Co	镍 Ni	砷 As	硒 Se	钼 Mo	镉 Cd	汞 Hg	铅 Pb
豆粕 Soybean meal	20	超标率 Over standard rate/%	—	0.00	0.00	—	15.00	—	—	0.00	25.00	—	0.00	0.00	0.00
		超标样品平均值 Mean of over standard sample/(mg/kg)	—	0.00	0.00	—	1.63	—	—	0.00	3.90	—	0.00	0.00	0.00
		总样品平均值 Mean of total sample/(mg/kg)	21.34	9.91	36.10	0.35	0.44	0.15	2.09	0.04	1.14	2.39	0.02	0.00	0.07
		最高值 Maximum/(mg/kg)	32.00	13.00	56.00	1.60	1.92	0.32	5.20	0.09	14.80	4.20	0.03	0.01	0.40
		SEM	2.00	0.79	1.76	0.08	0.13	0.02	0.39	0.01	0.75	0.26	0.00	0.00	0.03
		变异系数 CV/%	40.84	34.74	21.30	98.03	125.13	71.41	80.79	64.70	285.50	46.98	27.31	14.96	201.97
棉籽粕 Cottonseed meal	13	超标率 Over standard rate/%	—	0.00	0.00	—	40.00	—	—	0.00	30.00	—	0.00	0.00	15.00
		超标样品平均值 Mean of over standard sample/(mg/kg)	—	0.00	0.00	—	3.43	—	—	0.00	1.18	—	0.00	0.00	3.14
		总样品平均值 Mean of total sample/(mg/kg)	16.29	11.75	50.92	0.29	2.21	0.33	1.62	0.10	0.67	2.53	0.02	0.01	0.73
		最高值 Maximum/(mg/kg)	46.00	19.60	60.00	0.80	10.40	0.94	5.20	0.38	2.20	8.00	0.09	0.01	7.44
		SEM	3.24	1.62	2.45	0.08	0.82	0.07	0.47	0.03	0.21	0.60	0.01	0.00	0.60
		变异系数 CV/%	69.01	47.83	16.63	96.38	127.67	75.85	99.63	97.66	111.13	81.43	92.97	30.97	286.19

chinaXiv:201711.01394v1

菜籽粕 Rapeseed meal	11	超标率 Over standard rate/%	—	0.00	0.00	—	81.82	—	—	18.18	45.45	—	9.09	0.00	72.73
		超标样品平均值 Mean of over standard sample/(mg/kg)	—	0.00	0.00	—	7.48	—	—	2.22	0.36	—	0.24	0.00	4.91
		总样品平均值 Mean of total sample/(mg/kg)	61.27	9.89	64.13	1.34	6.25	0.53	1.55	0.48	0.29	0.67	0.15	0.01	3.58
		最高值 Maximum/(mg/kg)	90.00	13.40	86.00	4.60	22.00	1.26	3.80	3.80	0.50	1.06	0.24	0.01	22.00
		SEM	6.43	0.95	6.07	0.44	2.2	0.12	0.32	0.35	0.03	0.06	0.02	0.00	2.03
		变异系数 CV/%	33.17	30.52	29.93	104.66	111.32	72.65	64.95	230.38	29.86	29.85	38.27	33.67	179.52

chinaXiv:201711.01394v1

3 讨　论

3.1 不同饲料原料中的重金属污染情况

重金属的污染来源主要包括大气、水体和土壤，而谷物受重金属污染多是由土壤造成。近年来，中国污灌面积不断扩大，给土壤带来了长期和不可逆的污染[10]。同时，饲料原料的多样化也使饲料重金属安全遭遇新的挑战。

玉米和小麦是使用较多的饲料原料。本研究中玉米中的 Cu、Zn 含量分别为 2.57 和 25.22 mg/kg，略低于其他研究者的结果。如金枚等[11]调查的广西大厂矿区某屯玉米中 Cu 平均含量为 2.90 mg/kg，Zn 平均含量为 36.06 mg/kg。这是由于后者玉米样品来自矿区，而采矿、选矿及冶炼所产生的废石、矿渣等长期自然堆放，对矿区环境造成了严重的重金属污染[7]。而本研究中的玉米产地广泛，可能来自非矿区，也可能来自矿区。本研究中的玉米、小麦中 As 含量与肖细元等[12]报道的我国粮油作物（谷物与豆类等）中 As 含量（均值为 0.294 mg/kg）接近。但值得注意的是后者样品来自污染区，农作物受重金属污染较严重。因此，从侧面可以反映出 As 的污染在加剧。

粮食加工副产物的重金属含量调查报道较少，本研究发现大部分重金属元素在副产物中的含量和超标率都高于其本体作物。如麦麸的污染情况严重于小麦，喷浆玉米皮污染严重于玉米。这表明原料在加工制作过程中可能造成了重金属污染，特别是机器表面富含的 Cr、Cd 和 Pb。

油料饼粕类中的必需微量元素如 Mn、Cu、Zn 和 Se 含量都较高，这可能和作物种类有关。其中值得注意的是豆粕中 Se 含量（1.14 mg/kg）高于限量标准（0.30 mg/kg）近 3 倍。有害重金属污染较严重的是菜籽粕，其 Cr 和 Pb 的超标率大于 70%，其他有害重金属元素含量也较高。这可能和菜籽粕的压榨工艺有一定的关系。

3.2 饲料重金属污染的可能危害

Mn、Cu、Zn、Se 是动物生长所必需的微量元素，同时也是在饲料配方中普遍添加的元素。本研究中绝大多数饲料原料的 Mn 含量较高，麦麸和米糠中 Mn 含量超过 130.00 mg/kg。如果按照饲料配方中玉米（50%～60%）、豆粕（15%～30%）、麦麸（约 5%）等的比例来算，配方中（不计预混料）Mn 含量为 16～21 mg/kg，低于鸡、奶牛等饲养标准，与猪的饲养标准相当[13-17]，因此需要额外添加。本研究中 Cu 和 Zn 元素按照上述计算法则换算到配方中，略低于饲养标准或与饲养标准大致相当[13-17]，需要少量额外添加。且根据对配合饲料的调查发现 Cu、Zn 的超标率较高，这主要还是因为饲料厂添加高铜高锌造成的。

动物对 Se 的需要量较低，同时也更易中毒。如 NRC(1998)规定猪 Se 的需要量为 0.15～0.30 mg/kg，NRC(2001)规定泌乳奶牛 Se 的需要量为 0.30 mg/kg；但鸡、猪、绵羊和肉牛 Se 中毒剂量仅为 2.00 mg/kg [13-17]。本研究中玉米蛋白粉和棉籽粕中 Se 含量较高，分别为 0.62 和 0.67 mg/kg，其余原料不超过 0.30 mg/kg。如果按照玉米-豆粕型饲粮配方设计，Se 在配

chinaXiv:201711.01394v1

方中含量为 0.14～0.22 mg/kg，理论上能够满足动物需要，但实际生产中为了提高动物生产性能，往往会额外添加 Se。由于 Se 易中毒，因此在实际生产额外添加时必须考虑饲料原料中的 Se 含量，以防过度添加。

As、Cd、Cr、Hg 和 Pb 是对环境、动物和人类危害最大的一类重金属。如 Cr 过量会引起动物肝肾患病[1-2]；Pb 过量造成动物贫血、免疫功能障碍、抵抗力改变、神经系统损伤等急性和慢性病变[1-2]。本研究发现饲料原料受 Cr 和 Pb 污染较严重，与王旭[18]的研究结果一致。其中麦麸 Cr 含量高达 11.45 mg/kg，菜籽粕 Cr 高达 6.25 mg/kg，换算到配方中在 0.90～1.01 mg/kg，与限量标准接近或超过标准，应该提高警惕。此外，本研究中 Pb 虽然在玉米中含量较低，但在其副产物中含量较高，在米糠和菜籽粕中含量更高，并都已超出限量标准。因此必须注意配方中上述几种原料的监控，否则极有可能引起动物中毒。

V、Co、Ni、Mo 等重金属元素也是动物的必需元素，但动物对其需要量较低。本研究发现上述几种重金属含量在饲料原料中较低，这与张素娟[19]、王欣美等[20]在小麦籽粒和中药材上的研究结果一致。虽然其含量较低，但也足够满足动物生长需要，无需额外添加。因此类元素相比其他重金属的研究和应用较少，从安全角度考虑，应该引起重视。

3.3 不同地区饲料原料中重金属分布情况

本次研究结果发现绝大部分原料的重金属含量变异系数都较大，这可能与原料产地不同密切相关。本研究发现来自西南地区和华中地区的饲料原料受重金属污染相对严重，如西南地区的 Cd（0.10 mg/kg）、Pb（3.68 mg/kg）与华中地区的 Cd（0.15 mg/kg）均显著高于其他地区，这与史静等[21]在南方蔬菜上的研究结果一致。陆引罡等[22]对贵州省菜田土壤重金属 Hg、Pb、As、Cd、Cr 污染现状进行调查分析，结果表明，该地区土壤重金属污染较严重；佟洪金等[23]调查了成都市农作物基地土壤重金属分布情况，发现 Hg、Cd 污染程度达到国家规定的三级标准，Cu 污染较轻；重庆市土壤重金属 Hg 存在一定污染，Pb 含量明显降低，Cd 和 As 含量明显增加[24]。综合分析，这几种重金属元素在西南地区分布较广，含量相对较高，可能原因与该地区土壤的重金属背景值有关。

本研究发现东北地区的样品重金属含量相对较少，这与于志民等[25]在东北土壤中研究结果相反，这可能与近几年东北地区工业发展速度减缓有关。

此外，本研究在进行数据分析时，对原料销售企业也进行了数据统计。结果发现小型企业受 Hg、Cd、Pb、As 等元素污染较为严重，尤其是 Pb，可能是由于小型企业对饲料原料监管不严所造成，大中型企业污染情况较轻，但值得注意的是，大型企业的样品 As 含量也较高，应该加强对 As 的品控管理。

4 结　论

粮食加工副产物和菜籽粕中的重金属污染较严重，其中 Cr 和 Pb 的含量在部分饲料原料中严重超标，具有潜在的危险，应引起重视。

chinaXiv:201711.01394v1

ChinaXiv合作期刊

chinaXiv:201711.01394v1

参考文献：

[1] 于炎湖.饲料中的重金属污染及其预防[J].粮食与饲料工业,2001(6):12–14.

[2] 刘美江.饲料中的重金属污染对家禽的危害[J].山东畜牧兽医,2011, 32(8):53–54.

[3] 涂杰峰,罗钦,伍云卿,等.福建水产饲料重金属污染研究[J].中国农学通报,2011,27(29):76–79.

[4] 谢云发,汪生贵,韩廷义.青海省部分地区猪饲料和粪便中重金属含量调查[J].家畜生态学报,2014, 35(2):75–78.

[5] 中华人民共和国国家质量监督检验检疫总局.GB 13078-2001 饲料卫生标准[S].北京:中国标准出版社,2004.

[6] 中华人民共各国农业部.NY 861-2004 粮食(含谷物、豆类、薯类)及制品中铅、铬、镉、汞、硒、砷、铜、锌等八种元素限量[S].[s.l.]:[s.n.],2005.

[7] 国家标准化管理委员会.GB/T 14699.1-2005 饲料采样[S].北京:中国标准出版社,2005.

[8] 王小平,李柏.ICP-OES 和 ICP-MS 测定中日两国大米中 27 种矿质元素含量[J].光谱学与光谱分析,2010,30(8):2260–2264.

[9] 黄李蓉,张静,王宇萍,等.磷酸钙盐中金属元素的研究[J].中国畜牧杂志,2014,50(1):49–53.

[10] 吴传星.不同玉米品种对重金属吸收累积特性研究[D].硕士学位论文.雅安:四川农业大学,2010:74.

[11] 金枚,张新英,谢涛,等.广西大厂矿区某屯玉米重金属污染评价[J].安徽农业科学,2013,41(5):2225–2226.

[12] 肖细元,陈同斌,廖晓勇,等.我国主要蔬菜和粮油作物的砷含量与砷富集能力比较[J].环境科学学报,2009,29(2):291–296.

[13] National Research Council.Nutrient requirements of dairy cattle[M].6th rev. ed.Washington,D.C.:National Academy Press,1989:105–161.

[14] National Research Council.Nutrient Requirements of poultry[M].9th rev. ed.Washington,D.C.:National Academic Press,1994:1–94.

[15] National Research Council.Nutrient Requirements of swine[M].10th rev. ed.Washington,D.C.:National Academic Press,1998:1–123.

ChinaXiv合作期刊

[16] National Research Council.Nutrient Requirements of sheep[M].6th ed.Washington,D.C.:National Academy Press,1985:1–92.

[17] National Research Council.Nutrient requirements of dairy cattle[M].7th rev. ed.Washington,D.C.:National Academy Press,2001:105–161.

[18] 王旭.广东省蔬菜重金属风险评估研究[D].博士学位论文.武汉:华中农业大学,2012:133.

[19] 张素娟.蓝田冶炼厂周边农田土壤及小麦籽粒重金属污染分析与评价[D].硕士学位论文.西安:陕西师范大学,2009:78.

[20] 王欣美,夏晶,张甦,等.ICP-OES 法分析 18 种中药材中 11 种元素及其分布特征[J].中国卫生检验杂志,2012,22(4):695–699,703.

[21] 史静,张乃明.云南设施土壤重金属分布特征及污染评价[J].云南农业大学学报,2010,25(6):862–867.

[22] 陆引罡,王巩.贵州贵阳市郊区菜园土壤重金属污染的初步调查[J].土壤通报,2001,32(5):230–234.

[23] 佟洪金,涂仕华,赵秀兰,等.彭州市蔬菜基地土壤中重金属污染评价[J].西南农业学报,2003,16(Suppl.):122–125.

[24] 李其林,黄昀.重庆市近郊区蔬菜地土壤重金属含量变化及污染情况[J].土壤通报,2002,33(2):158–160.

[25] 于志民,沈光,吕品,等.黑龙江省典型蔬菜大棚土壤重金属污染评价[J].腐植酸,2012(5):14–17,40.

Investigation on Heavy Metal Distribution in Energy Feedstuffs and Protein Feedstuffs of *Sichuan* Province

BAI Xue[1,2,3] YUAN Zehong[1,2] WANG Jianping[1,2] DING Xuemei[1,2] BAI Shiping[1,2] ZENG Qiufeng[1,2] ZHANG Keying[1,2]*

(1. Key Laboratory for Animal Disease-Resistance Nutrition of China Ministry of Education, Chengdu 611130, *China; 2. Institute of Animal Nutrition, Sichuan Agricultural University, Chengdu* 611130, *China; 3. College of Life Science and Technology, Southwest University for Nationalities, Chengdu* 610000 *China)*

Abstract: This study was designed to investigate the heavy metal distribution in common use

chinaXiv:201711.01394v1

energy feedstuffs and protein feedstuffs of *Sichuan* province, in orde to provided the safely in feedstuffs and animal products. The contents of manganese (Mn), copper (Cu), zinc (Zn), vanadium (V), chromium (Cr), cobalt (Co), nickel (Ni), selenium (Se), molybdenum (Mo), cadmium (Cd), arsenic (As), mercury (Hg) and lead (Pb) in 68 samples of energy feedstuffs [corn, wheat, distillers dried grains with solubles（DDGS）, corn husk of spray, wheat bran and rice bran] and 61 samples of protein feedstuffs (corn gluten meal, corn germ meal, soybean meal, rapeseed meal and cottonseed meal) of *Sichuan* province were determined by inductively coupled plasma mass spectrometry (ICP-MS). The results showed that: 1) the over standard rates of Cu, Cr and Pb in corn were 5.00%, 20.00% and 5.00%, respectively; and the means of over standard sample were 11.00, 1.41 and 1.06 mg/kg, respectively. The over standard rates of Cu, Zn, Cr, Se and Pb in wheat were 50.00%, 30.00%, 50.00%, 20.00% and 30.00%, respectively; and the means of over standard sample were 12.96, 54.67, 4.92, 0.53 and 0.72 mg/kg, respectively. 2) the over standard rates of Cu, Zn, Cr, Se, Cd and Pb in wheat bran were 100.00%, 54.55%, 81.82%, 9.09%, 45.45% and 72.73%, respectively; and the means of over standard sample was 16.01, 62.00, 13.96, 0.82, 0.42 and 1.99 mg/kg, respectively. The over standard rates of Cu, Zn, Cr, As, Se, Cd and Pb in rice bran were 83.33%, 16.67%, 83.33%, 83.33%, 16.67%, 66.67% and 100.00%, respectively; and the means of over standard sample were 11.48, 64.00, 5.37, 1.05, 0.32, 0.23 and 19.57 mg/kg, respectively. 3) The over standard rates of Cu, Zn, Cr, As, Se and Pb in corn germ meal were 25.00%, 37.50%, 75.00%, 12.50%, 25.00% and 50.00%, respectively; and the means of over standard sample were 13.50, 64.00, 6.10, 1.82, 0.46 and 1.66 mg/kg, respectively. The over standard rates of Cu, Cr and Se in corn gluten meal were 11.11%, 55.56% and 55.56%, respectively; and the means of over standard sample were 11.40, 1.56 and 0.94 mg/kg, respectively. The over standard rates of Zn, Cr and Pb in corn husk of spray were 44.44%, 77.78% and 55.56%, respectively; and the means of over standard sample were 57.50, 11.75, 6.13, 5.57 and 1.65 mg/kg, respectively. The over standard rates of Cu, Zn, Cr, Se, Cd and Pb in DDGS were 33.33%, 58.33%, 66.67%, 8.33%, 8.33% and 66.67%, respectively, and the means of over standard sample were 11.75, 62.57, 5.57, 0.30, 0.62 and 4.47 mg/kg, respectively. 4) The over standard rates of Cr and Se in soybean meal was 15.00% and 25.00%, respectively; and the means of over standard sample were 3.90 and 1.63 mg/kg, respectively. The over standard rates of Cr, Se and Pb in cottonseed meal were 40.00%, 30.00% and 15.00%, respectively; and the means of over standard sample were 3.43, 1.18 and 3.14 mg/kg, respectively. The over standard rates of Cr, As, Se, Cd and Pb in rapeseed meal were 81.82%, 18.18%, 45.45%, 9.09%, 45.45% and 72.73%, respectively; and the means of over standard sample were 7.48, 2.22, 0.36, 0.24 and 4.91 mg/kg, respectively. In conclusion, the heavy metal pollution is more seriousin in the by-products in foodstuffs and cottonseed meal, the contens of Cr and Pb in feed ingredient are serious excessive, which is potentially dangerous, should be paid attention to it.

Key words: ICP-MS; feed ingredients; heavy metal; pollution

chinaXiv:201711.01394v1

ChinaXiv合作期刊

*Corresponding author, professor, E-mail: zkeying@sicau.edu.cn (责任编辑　武海龙)

chinaXiv:201711.01394v1